

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**



07703-0090

(19)

(11) Publication number: **07145407 A**

Generated Document.

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN(21) Application number: **05316061**(51) Intl. Cl.: **B22F 9/08 B22F 1/00 C09D 5/3
C22C 45/08**(22) Application date: **22.11.93**

(30) Priority:

(43) Date of
application publication: **06.06.95**(84) Designated
contracting states:(71) Applicant: **TEIKOKU PISTON RING CO
LTD**(72) Inventor: **SHINOHARA YOSHIYUKI
YAMAGUCHI HITOSHI
HARAKAWA YOSHIO**

(74) Representative:

**(54) PRODUCTION OF
FLAT POWDER FOR
DESIGN COATING
MATERIAL**

(57) Abstract:

PURPOSE: To produce flat powder for a design coating material having a smooth surface and circumference, high brightness and hardness and small grain size at a good yield.

CONSTITUTION: A molten alloy consisting of the compsn. expressed by general formula $Al_{10-a-b}M_aX_b$ (where M is one or 2 kinds of elements selected from Co, Ni and Cr, X is one or 2 kinds of elements selected from among Y, La, Ce, Sm, Nd, Ca, Mn [mischmetal] and a, b are $2 \leq a \leq 20$, $1 \leq b \leq 15$ by atm.%) is atomized to obtain amorphous raw material powder. The powder of $\leq 20 \mu m$ grain size is

preferably selected from this raw material powder and is flattened by ball milling or stamp milling, by which the flat powder for the design coating material is obtd.

COPYRIGHT: (C)1995,JPO

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-145407

(43) 公開日 平成7年(1995)6月6日

(51) Int. Cl. ⁶	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
B 2 2 F 9/08	A			
1/00	N			
C 0 9 D 5/38	PRF			
C 2 2 C 45/08				

審査請求 未請求 請求項の数3 F D (全 5 頁)

(21) 出願番号 特願平5-316061

(22) 出願日 平成5年(1993)11月22日

(71) 出願人 000215785

帝国ピストンリング株式会社
東京都中央区八重洲1丁目9番9号

(72) 発明者 篠原 吉幸

東京都中央区八重洲1-9-9 帝国ピ
ストンリング株式会社内

(72) 発明者 山口 均

東京都中央区八重洲1-9-9 帝国ピ
ストンリング株式会社内

(72) 発明者 原川 義夫

東京都中央区八重洲1-9-9 帝国ピ
ストンリング株式会社内

(74) 代理人 弁理士 松井 茂

(54) 【発明の名称】 意匠塗料用扁平粉末の製造方法

(57) 【要約】

【目的】 表面及び周囲が平滑で、光沢、硬度が高く、粒径の小さい意匠塗料用扁平粉末を、収率よく製造する方法を提供する。

【構成】 一般式 $Al_{100-a-b} M_a X_b$ (但し、MはCo、Ni、Crから選ばれた1種又は2種以上の元素、XはY、La、Ce、Sm、Nd、Ca、Mm [ミッシュメタル] から選ばれた1種又は2種以上の元素であり、a、bは原子%で $2 \leq a \leq 20$ 、 $1 \leq b \leq 15$ である。) で示される組成の合金溶湯をアトマイズして非晶質の原料粉末を得る。次いで、この原料粉末から好ましくは粒径 $20 \mu m$ 以下の粉末を採取し、ボールミル加工又はスタンプミル加工して扁平化することにより、意匠塗料用扁平粉末を得る。

図面代用写真



【特許請求の範囲】

【請求項1】 一般式 $Al_{100-a-b} M_a X_b$ (但し、MはCo、Ni、Crから選ばれた1種又は2種以上の元素、XはY、La、Ce、Sm、Nd、Ca、Mm [ミッシュメタル] から選ばれた1種又は2種以上の元素であり、a、bは原子%で $2 \leq a \leq 20$ 、 $1 \leq b \leq 15$ である。) で示される組成の合金溶湯をアトマイズして、非晶質の原料粉末を得る工程と、

前記原料粉末をボールミル加工又はスタンプミル加工によって扁平化する工程とを含むことを特徴とする意匠塗料用扁平粉末の製造方法。

【請求項2】 前記原料粉末のうち、粒径 $20 \mu m$ 以下の粉末を採取して、前記ボールミル加工又はスタンプミル加工を行う請求項1記載の意匠塗料用扁平粉末の製造方法。

【請求項3】 前記原料粉末を厚さ $3 \mu m$ 以下に扁平化する請求項1又は2記載の意匠塗料用扁平粉末の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、非晶質アルミニウム合金からなる意匠塗料用扁平粉末の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 従来より、塗膜の耐食性、耐候性を向上させたり、金属的な輝きをもつ外観を得るために、塗料用顔料として金属粉末が用いられている。すなわち、金属粉末を塗料用の樹脂に混合して、刷毛塗り法、スプレー法等により塗布すると、樹脂の硬化時に生じる表面張力によって粉末が塗面と平行に積層し(これをリーフィング現象という)、連続した被膜が形成されて、素材を外気から遮断し、良好な耐食性、耐候性が得られるとともに、金属光沢を有する美しい外観が得られる。そして、このような金属粉末の形状は、リーフィング現象の発生を良好にするため、一般に薄片状のものが好ましいとされている。

【0003】 上記の塗料用顔料、特に意匠塗料用顔料としては、純アルミニウムからなる扁平粉末が一般に用いられている。このアルミニウム粉末は、空気アトマイズ法や不活性ガスアトマイズ法などによって、アルミニウムの溶湯から粒子状の原料粉末を作り、この原料粉末をボールミルやスタンプミル中で粉碎し、微粉化するとともに、剪断力によって延ばして物理的に扁平化したものである。

【0004】 また、本出願人らによる特開平1-287209号には、非晶質相を形成可能な合金の溶湯をノズルから流出させ、この溶湯にガスを噴霧することによって溶湯の液滴を生成させ、この液滴流方向に配置された傘型又はホーン型の回転冷却体の表面に、上記液滴を凝固しないうちに衝突させて急冷凝固させることにより、金属溶湯から直接扁平粉末を製造する方法が開示されて

いる。

【0005】 一方、近年、アルミニウム系の非晶質合金が多数発見され、例えば特開平1-275732号には、 $Al_a M_b X_c$ 系の非晶質合金が開示されている。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、純アルミニウムのアトマイズ粉末のような結晶質の原料粉末は、一般に強度が低いので、ボールミルやスタンプミル中で扁平化すると、原料粉末が砕けたり割れたりして、周囲や表面に凹凸が生じ、塗料化した場合に良好な反射率、光沢が得られなかった。また、扁平粉末の硬度が低いので、塗料を攪拌する際に粉末が折れ曲がるなどして、反射率が一層低下するという問題があった。

【0007】 また、意匠塗料用の扁平粉末としては、塗装性や塗膜強度の点から、粒径が小さいもの、例えば約 $50 \mu m$ 以下のものが好ましいとされているが、特開平1-287209号に開示された方法では、溶湯の液滴のうち微細なものは、回転冷却体の表面に衝突する前に球状を保ったまま凝固してしまう。また、回転冷却体に接触しないで凝固した粒径の大きな粉末は、急冷効果が不足して非晶質になりにくい。このため、非晶質合金からなる微細な扁平粉末の収率が低いという問題があった。

【0008】 したがって、微細な粒径の非晶質合金粉末を得るためには、アトマイズするだけで非晶質になるような合金組成を採用する必要があるが、特開平1-275732号に開示された $Al_a M_b X_c$ 系の合金組成では、アトマイズするだけでは必ずしも非晶質にならなかった。

【0009】 したがって、本発明の目的は、表面及び周囲が平滑で、光沢及び硬度が高く、しかも粒径が小さい意匠塗料用扁平粉末を、収率よく製造する方法を提供することにある。

【0010】

【課題を解決するための手段】 上記目的を達成するため、本発明の意匠塗料用扁平粉末の製造方法は、一般式 $Al_{100-a-b} M_a X_b$ (但し、MはCo、Ni、Crから選ばれた1種又は2種以上の元素、XはY、La、Ce、Sm、Nd、Ca、Mm [ミッシュメタル] から選ばれた1種又は2種以上の元素であり、a、bは原子%で $2 \leq a \leq 20$ 、 $1 \leq b \leq 15$ である。) で示される組成の合金溶湯をアトマイズして、非晶質の原料粉末を得る工程と、前記原料粉末をボールミル加工又はスタンプミル加工によって扁平化する工程とを含むことを特徴とする。

【0011】 以下、本発明について更に詳細に説明する。本発明において合金組成を上記のように限定した理由は、アトマイズするだけで非晶質となるように、より非晶質化しやすい組成に限定したためである。すなわち、前記のように、溶湯の液滴のうち微細なものは、回

転冷却体の表面に衝突する前に凝固してしまうので、微細な粒径の非晶質合金粉末を得るためには、回転冷却体に衝突させなくてもアトマイズするだけで非晶質になり得る組成にする必要があるからである。本発明において、M量が2原子%未満又は20原子%を超えるもの、及びX量が1原子%未満又は15原子%を超えるものでは、アトマイズしただけでは非晶質相の形成が困難となるので好ましくない。

【0012】上記合金溶湯をアトマイズして非晶質の原料粉末を得る方法に制限はなく、空気アトマイズ法や不活性ガスアトマイズ法などの、通常行われている各種アトマイズ法を適用することができる。例えば、噴射ガスとしては、アルゴン、ヘリウム、窒素、空気あるいはそれらの混合ガスなどが好ましく用いられ、噴霧化ノズルからの噴射ガス圧は、 20 kg/cm^2 以上とすることが好ましい。

【0013】本発明では、アトマイズして得られた粉末のうち、粒径 $20\text{ }\mu\text{m}$ 以下の粉末を分級して原料粉末とするのが好ましく、中でも粒径 $5\sim 15\text{ }\mu\text{m}$ の粉末が好ましい。原料粉末の粒径が $20\text{ }\mu\text{m}$ を超えると、最終的に得られる扁平粉末の粒径が大きくなりすぎるので好ましくない。また、このときの粉末の形状は、扁平化したときの粉末の形状が丸い均一な形状となるように、球状であることがより好ましい。

【0014】なお、上記において、粒径 $20\text{ }\mu\text{m}$ 以下としたのは、次のような計算に基づいている。すなわち、球状粉末を押しつぶして厚さ $2\text{ }\mu\text{m}$ の円盤状の扁平粉末に加工したとすると、球状粉末の径 D_0 と、扁平粉末の径 D_d の関係は、両者の体積が等しいとすれば下記表1の通りである。

【0015】

【表1】

D_0	D_d
10	18.3
20	51.6
30	94.8

【0016】したがって、意匠塗料用の扁平粉末として好ましいとされる、粒径約 $50\text{ }\mu\text{m}$ 以下のものを得ようとする、粒径約 $20\text{ }\mu\text{m}$ 以下の粉末を扁平化すればよいことがわかる。

【0017】こうして得られた、好ましくは粒径 $20\text{ }\mu\text{m}$ 以下の原料粉末をボールミル加工又はスタンプミル加工によって扁平化することにより、意匠塗料用扁平粉末を得ることができる。ボールミル装置の大きさや形状、ボール径、回転速度、処理時間等に制限はなく、原料粉末の量や、目的とする厚さなどに応じて適宜選択すればよい。スタンプミル装置についても特に制限はなく、各

種のものが使用できる。なお、最終的に得られる粉末の厚さが $3\text{ }\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $0.3\sim 1\text{ }\mu\text{m}$ となるように扁平化することが好ましい。

【0018】上記ボールミル加工又はスタンプミル加工においては、ステアリン酸、オレイン酸等の潤滑剤を用いることが好ましい。これによって、粉末の光沢を良好に保つことができるほか、粉末どうしの凝着を防ぐことができ、扁平粉末の粒度を均一化することができる。潤滑剤の使用量は、粉末量に対して $0.01\sim 5$ 重量%程度が好ましい。また、潤滑剤を溶解する有機溶媒としては、ミネラルスピリット、アセトン、トルエン等を用いればよい。

【0019】こうして得られた意匠塗料用扁平粉末は、好ましくは粒径 $50\text{ }\mu\text{m}$ 以下、厚さ $3\text{ }\mu\text{m}$ 以下のほぼ円形に近い扁平粉末であって、各種の水溶性溶媒塗料、有機溶媒塗料に顔料として配合して使用することができる。

【0020】

【作用】アルミニウム系の非晶質合金としては、例えば特開平1-275732号に開示された Al-Mb-Xc 系合金など、多くのものが知られているが、本発明の組成を有する合金は、前述したように他のアルミニウム系非晶質合金よりも非晶質形成能が高い特徴がある。このため、回転冷却体に衝突させなくてもアトマイズするだけで非晶質にすることが可能であり、その結果、アトマイズ中に空間で凝固してしまうような微細な粒径の粉末であっても非晶質にすることができる。

【0021】すなわち、本発明では、合金の組成を上記のように限定したことにより、粒径の小さい非晶質の原料粉末を収率よく得ることができる。また、純アルミニウム粉末の硬度がHV20以下であるのに対し、HV200以上の高い硬度の原料粉末を得ることができる。更に、意匠塗料粉末として十分な光輝性、耐食性を有する粉末を得ることができる。

【0022】また、上記非晶質の原料粉末は加工性に優れているので、ボールミル加工やスタンプミル加工を施しても砕けたり割れたりすることがなく、表面、周囲を平滑に保ったまま扁平化することができる。このため、形状が均一で、光沢、反射率の高い扁平粉末を得ることができる。

【0023】

【実施例】

実施例1～4、比較例1～7

表2に示す各種組成の合金又はアルミニウムを高周波溶解炉で溶解し、高圧ガスアトマイズ装置において、比較例2では圧力 20 kg/cm^2 未満、その他は圧力 40 kg/cm^2 の窒素ガスを噴霧してアトマイズした。高圧ガスアトマイズ装置としては、特開平1-287209号に記載されたアトマイズ装置から、傘型の回転冷却体を外したものを使用した。なお、噴霧時の溶湯温度

は、比較例5では800℃、その他は1100℃であった。こうして得られた粉末から、粒径20 μ m以下の球状粉末を分級して、原料粉末とした。

【0024】次いで、各原料粉末50gを容器内径160mm、高さ160mmのステンレス製ボールミル（株式会社入江商会製）中に投入し、ステアリン酸をミネラルスピリッツに溶解したものを潤滑剤として、回転速度60rpmで12～24時間微粉砕して扁平粉末を得た。なお、ボールとしては、3/4、5/8、1/2、3/8インチのものを組み合わせて使用した。

* 10

		合金組成（原子%）	粉末組織	扁平粉末の外観
実 施 例	1	Al ₈₄ Ni ₁₀ Mn ₆	完全に非晶質	粉末の周囲、表面ともに平滑で、光沢あり
	2	Al ₈₀ Ni ₈ Co ₂	完全に非晶質	粉末の周囲、表面ともに平滑で、光沢あり
	3	Al ₈₇ Ni ₈ Cr ₁ Mn ₄	完全に非晶質	粉末の周囲、表面ともに平滑で、光沢あり
	4	Al ₈₀ Co ₁₀ Mn ₄	完全に非晶質	粉末の周囲、表面ともに平滑で、光沢あり
比 較 例	1	純Al (99.9%)	結晶質	粉末の表面や周囲に凹凸があり、光沢なし
	2	Al ₈₄ Ni ₁₀ Mn ₆	結晶質粉末混在	割れた粉末や、表面が荒れた粉末が生じ、光沢が劣る
	3	Al _{84.7} Ni ₈ Mn _{6.5}	結晶質粉末混在	割れた粉末や、表面が荒れた粉末が生じ、光沢が劣る
	4	Al _{84.5} Co ₁₀ La _{0.5}	結晶質粉末混在	割れた粉末や、表面が荒れた粉末が生じ、光沢が劣る
	5	Al _{88.5} Co ₁₀ Y _{0.5}	結晶質粉末混在	割れた粉末や、表面が荒れた粉末が生じ、光沢が劣る
	6	Al ₈₈ Cr ₁₀ Ce ₂	結晶質粉末混在	割れた粉末や、表面が荒れた粉末が生じ、光沢が劣る
	7	Al ₇₄ Cr ₁ Nd ₂₅	結晶質粉末混在	割れた粉末や、表面が荒れた粉末が生じ、光沢が劣る

【0027】表2の結果より、実施例1～4で示される組成の合金をアトマイズし、分級すると、完全に非晶質の粉末が得られることがわかった。一方、比較例1、3～7で示される組成の合金をアトマイズした場合には、完全に非晶質の粉末を得ることはできなかった。また、比較例2は、実施例1と同じ組成の合金を、噴射ガス圧力を20kg/cm²未満としてアトマイズしたものであるが、この場合にも、完全に非晶質の粉末を得ることはできなかった。

【0028】そして、実施例1～4のような非晶質の粉末をボールミル加工すると、図1に示されるように、周囲、表面ともに平滑で、光沢のある扁平粉末を得ることができた。一方、比較例1のような結晶質粉末や、比較例2～7のような結晶質と非晶質とが混在した粉末をボ

*【0025】上記各原料粉末について、ボールミル加工の前後にX線回折を行い、粉末組織を調べた。また、各扁平粉末を走査型電子顕微鏡で観察し、形状及び光沢を比較した。その結果を表2に示す。また、実施例1の扁平粉末の500倍の走査型電子顕微鏡写真を図1に、比較例1の扁平粉末の500倍の走査型電子顕微鏡写真を図2に、それぞれ示す。

【0026】

【表2】

※ールミル加工すると、図2に示されるように、粉末の周囲がひび割れたり、表面に凹凸が生じたりして、実施例1～4のような、形状、光沢ともに良好な扁平粉末を得ることはできなかった。

【0029】なお、こうして得られた実施例1～4の扁平粉末の平均粒径は、20～30 μ mであり、平均厚さは、0.5～2.0 μ mであった。また、実施例1～4における最終的に得られた扁平粉末の収率は、90～95%であった。

【0030】

【発明の効果】以上説明したように、本発明によれば、特定の組成を有する合金溶湯をアトマイズして非晶質の原料粉末とし、この原料粉末をボールミル加工又はスタンプミル加工することによって、周囲及び表面が平滑

(5)

特開平7-145407

7

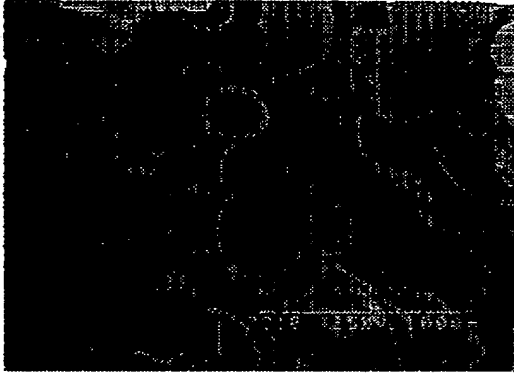
で、光沢、硬度が高く、粒径の小さい意匠塗料用扁平粉末を収率よく製造することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の方法によって製造された意匠塗料用の

【図1】

顕微鏡写真



8

扁平金属粉末の粒子構造を示す顕微鏡写真である。

【図2】従来の方法によって製造された意匠塗料用の扁平金属粉末の粒子構造を示す顕微鏡写真である。

【図2】

顕微鏡写真



写真